

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

Jc841 U.S. PTO

09/773677



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application:

2000年 2月 4日

出 願 番 号
Application Number:

特願2000-027582

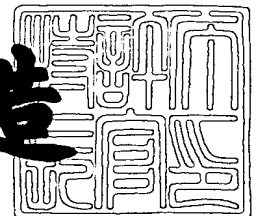
出 願 人
Applicant(s):

信越化学工業株式会社

2000年 9月 8日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3071916

【書類名】 特許願

【整理番号】 11691

【提出日】 平成12年 2月 4日

【あて先】 特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】 C01B 33/12

【発明者】

 【住所又は居所】 群馬県安中市磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社 群馬事業所内

 【氏名】 福岡 宏文

【発明者】

 【住所又は居所】 群馬県安中市磯部2丁目13番1号 信越化学工業株式会社 群馬事業所内

 【氏名】 上野 進

【発明者】

 【住所又は居所】 東京都千代田区大手町二丁目6番1号 信越化学工業株式会社社内

 【氏名】 福田 健

【特許出願人】

 【識別番号】 000002060

 【氏名又は名称】 信越化学工業株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100079304

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 小島 隆司

【選任した代理人】

 【識別番号】 100103595

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 西川 裕子

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003207

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 酸化珪素粉末の連続製造方法及び連続製造装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 二酸化珪素粉末を含む混合原料粉末を反応炉内に供給し、この反応炉内で不活性ガスもしくは減圧下に1100～1600℃に加熱して酸化珪素ガスを発生させ、この酸化珪素ガスを1000℃を超え1300℃以下に保持された搬送管を通して冷却室内に導入し、冷却した基体表面に析出させ、次いでこの酸化珪素析出物を連続的に回収することを特徴とする酸化珪素粉末の連続製造方法。

【請求項2】 混合原料粉末が二酸化珪素粉末と金属珪素粉末との混合物である請求項1記載の製造方法。

【請求項3】 二酸化珪素粉末を含む混合原料粉末を反応させて酸化珪素ガスを生成させる反応室と、この反応室内に上記混合原料粉末を供給する原料供給機構と、上記酸化珪素ガスを冷却した基体表面に析出させる析出室と、上記酸化珪素ガスを上記反応室から上記析出室に搬送する搬送ラインと、上記基体表面に析出した酸化珪素粉末を回収する回収機構とを具備することを特徴とする酸化珪素粉末の連続製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、包装用フィルム蒸着用、リチウムイオン2次電池負極活物質などとして好適に使用される酸化珪素粉末の連続製造方法及び連続製造装置に関する。

【0002】

【従来技術】

従来、酸化珪素粉末の製造方法として、二酸化珪素系酸化物粉末からなる原料混合物を減圧非酸化性雰囲気中で熱処理し、SiO₂蒸気を発生させ、このSiO₂蒸気を気相中で凝縮させて、0.1μm以下の微細アモルファス状のSiO₂粉末を連続的に製造する方法（特開昭63-103815号公報）、及び原料珪素を加熱蒸発させて、表面組織を粗とした基体の表面に蒸着させる方法（特開平9-

1 1 0 4 1 2 号公報) が知られている。

【 0 0 0 3 】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上述した特開昭 6 3 - 1 0 3 8 1 5 号公報の方法は、連続的な製造が可能であるが、生成した S i O 粉末は微粉であり、大気に取り出した際の酸化反応により高純度の酸化珪素粉末が製造できない問題がある。一方で、特開平 9 - 1 1 0 4 1 2 号公報に記載の方法は、高純度の酸化珪素粉末が製造できるものの、回分法を前提としているため、量産化が困難であり、結果として高価な酸化珪素粉末しか製造できない。

【 0 0 0 4 】

本発明は、上記事情に鑑みなされたもので、高純度の酸化珪素粉末を効率的に低コストで製造することができる酸化珪素粉末の連続製造方法及び連続製造装置を提供することを目的とする。

【 0 0 0 5 】

【課題を解決するための手段及び発明の実施の形態】

本発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を行った結果、少なくとも二酸化珪素粉末を含む混合原料粉末を 1 1 0 0 ~ 1 6 0 0 ℃ に加熱保持された反応室内に供給し、反応室内で発生した酸化珪素蒸気を 1 0 0 0 ℃ を超え 1 3 0 0 ℃ 以下に保持された搬送ラインを介して析出室に搬送し、析出室内で冷却された基体表面に析出させ、この析出物を随時掻き取り、回収室で回収することで、酸化珪素粉末の連続的な製造が可能であることを見出した。

【 0 0 0 6 】

従って、本発明は、

(1) 二酸化珪素粉末を含む混合原料粉末を反応炉内に供給し、この反応炉内で不活性ガスもしくは減圧下に 1 1 0 0 ~ 1 6 0 0 ℃ に加熱して酸化珪素ガスを発生させ、この酸化珪素ガスを 1 0 0 0 ℃ を超え 1 3 0 0 ℃ 以下に保持された搬送管を通して冷却室内に導入し、冷却した基体表面に析出させ、次いでこの酸化珪素析出物を連続的に回収することを特徴とする酸化珪素粉末の連続製造方法、及び、

(2) 二酸化珪素粉末を含む混合原料粉末を反応させて酸化珪素ガスを生成させる反応室と、この反応室内に上記混合原料粉末を供給する原料供給機構と、上記酸化珪素ガスを冷却した基体表面に析出させる析出室と、上記酸化珪素ガスを上記反応室から上記析出室に搬送する搬送ラインと、上記基体表面に析出した酸化珪素粉末を回収する回収機構とを具備することを特徴とする酸化珪素粉末の連続製造装置

を提供する。

【0007】

以下、本発明につき更に詳しく説明する。

本発明の酸化珪素粉末の連続製造方法において、原料としては、二酸化珪素粉末とこれを還元する粉末との混合物を用いる。具体的な還元粉末としては、金属珪素化合物、炭素含有粉末などが挙げられるが、特に金属珪素粉末を用いたものが、①反応性を高める、②収率を高めるといった点で効果的であり、好ましく用いられる。

【0008】

本発明では、上記混合原料粉末を反応室内において1100～1600℃、好ましくは1200～1500℃の温度に加熱、保持し、酸化珪素ガスを生成させる。反応温度が1100℃未満では、反応が進行し難く生産性が低下してしまうし、1600℃を超えると、混合原料粉末が熔融して逆に反応性が低下したり、炉材の選定が困難になるおそれがある。

【0009】

一方、炉内雰囲気は不活性ガスもしくは減圧下であるが、熱力学的に減圧下の方が反応性が高く、低温反応が可能となるため、減圧下で行うことが望ましい。

【0010】

この場合、上記反応室には、原料供給機構（フィーダー）にて、上記混合原料粉末を適宜間隔ごとに又は連続的に供給し、反応を連続的に行うものである。

【0011】

上記反応室内で生成した酸化珪素ガスは、これを搬送ラインを介して析出室に連続的に供給する。

【0012】

この場合、搬送ラインは、1000℃を超え1300℃以下、好ましくは1100～1200℃に加熱、保持する。搬送ラインの温度が1000℃以下では、酸化珪素蒸気が搬送管内壁に析出、付着し、運転上支障を生じ、安定的な連続運転ができなくなる。逆に、1300℃を超える温度に加熱しても、それ以上の効果は見られないばかりか、電力コストの上昇を招いてしまう。

【0013】

上記析出室内には、冷却された基体が配置され、この析出室内に導入された上記酸化珪素ガスがこの冷却基体に接触、冷却されることにより、この基体上に酸化珪素粉末が析出する。ここで、基体を冷却する目的は、非晶質な酸化珪素を製造するためであり、無冷却の場合は、析出した酸化珪素が不均化反応により二酸化珪素と金属珪素に分かれてしまったり、一部結晶質の金属珪素が混入してしまう。冷媒の種類については特に限定しないが、水、熱媒といった液体、空気、窒素といった気体はその目的によって使われる。また、基体の種類も特に限定しないが、加工性の点でSUSやモリブデン、タングステンといった高融点金属が好適に用いられる。なお、基体の冷却温度は200～500℃、特に300～400℃が好ましい。

【0014】

上記基体上に析出した酸化珪素粉末は、掻き取り等の適宜な手段により回収する。

【0015】

上記方法に用いる装置としては、例えば図1に示すような装置を用いることができる。ここで、図1において、1は反応炉であり、その内部の反応室2に上記混合原料粉末3が供給される。この反応炉1にはヒーター4が配設され、ヒーター4を通電することにより反応室2が1100～1600℃に保持される。なお、5は断熱材である。

【0016】

6は、補給ホッパー7と、フィーダー8と、原料供給管9を具備する原料供給機構で、ホッパー7からフィーダー8に供給された混合原料粉末をフィーダー8

を作動させることにより原料供給管 9 を介して上記反応室 2 に供給する。供給は、反応室内炉圧 P を観察し、反応室内の原料残存量を推測しながら間欠的又は連続的に行うことができる。

【 0 0 1 7 】

1 1 は、ヒーターが設けられ、内部を 1 0 0 0℃ を超え 1 3 0 0℃ 以下に保持された搬送管（搬送ライン） 1 0 を介して上記反応炉 1 と連結された析出槽であり、その内部の析出室 1 2 には、基体 1 3 が配置される。この基体 1 3 内には冷媒通路が形成され、この冷媒通路に冷媒導入管 1 4 及び冷媒排出管 1 5 がそれぞれ連通し、基体 1 3 がこの冷媒によって所定温度に冷却されるようになっている。また、上記基体 1 3 上には、この基体 1 3 に析出した酸化珪素粉末を掻き取り回収する掻き取り装置（酸化珪素粉末回収機構） 1 6 が配設されている。

【 0 0 1 8 】

また、1 8 は、回収管 1 7 を介して上記析出槽 1 1 と連結された回収槽であり、上記析出室 1 2 内の基体 1 3 上に析出され、かつ上記掻き取り装置 1 6 によって掻き取り、回収された酸化珪素粉末が、回収管 1 7 を介して回収槽 1 8 に落下、回収されるものである。なお、図中 1 9, 2 0, 2 1 はそれぞれ真空ポンプである。

【 0 0 1 9 】

上記装置によれば、非晶質の酸化珪素粉末を連続して安定に製造できる。

【 0 0 2 0 】

なお、上記方法、装置によって得られる酸化珪素粉末は、通常 B E T 比表面積 $0.5 \sim 300 \text{ m}^2/\text{g}$ 、特に $5 \sim 100 \text{ m}^2/\text{g}$ であり、また純度 99.9% 以上、特に 99.95% 以上である。

【 0 0 2 1 】

【実施例】

以下、実施例及び比較例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明は下記実施例に限定されるものではない。

【 0 0 2 2 】

〔実施例〕

図1に示す連続製造装置を用いて酸化珪素粉末を製造した。原料は、二酸化珪素粉末（BET比表面積 $200\text{ m}^2/\text{g}$ ）と金属珪素粉末（BET比表面積 $3\text{ m}^2/\text{g}$ ）を等量モルの割合で攪拌混合機を用いて混合した混合粉末であり、反応室2の容積が 0.5 m^3 の反応炉1内に 20 kg 仕込んだ。次に、真空ポンプを用いて炉内を 0.1 Torr 以下に減圧した後、ヒーター4に通電し、 1300°C の温度に昇温、保持した。一方で、搬送管10を 1100°C に加熱、保持し、冷媒導入管14に水を流入し、SUS製の基体13を冷却した。次に、フィーダー8を作動させ、混合原料粉末を $2\text{ kg}/\text{Hr}$ の割合で連続供給し、連続反応を行わせた。基体13上に析出した酸化珪素は、スクレーパー16により連続的に掻き取られ、回収室18によって回収した。上記運転を120時間連続して行った結果、酸化珪素粉末は $1.6\text{ kg}/\text{Hr}$ （収率＝80％）で回収された。また、得られた酸化珪素粉末は、BET比表面積 $8\text{ m}^2/\text{g}$ 、純度99.9％以上の非晶質粉末であり、運転終了後、装置内観察においても特に問題がないことが確認された。

【0023】

〔比較例1〕

搬送管10を 1000°C としたほかは、実施例と同じ条件で酸化珪素を連続的に製造した。得られた酸化珪素粉末は、BET比表面積 $8\text{ m}^2/\text{g}$ 、純度99.9％以上の非晶質粉末であったが、運転開始25時間後に搬送管10が酸化珪素析出物により閉塞し、運転継続が不可能な状態となった。

【0024】

〔比較例2〕

基体13を冷却しないほかは、実施例と同じ条件で酸化珪素を連続的に製造した。運転終了後の内部観察では特に問題は見られなかったが、得られた酸化珪素粉末は、結晶質金属珪素の含有が認められ、BET比表面積 $4\text{ m}^2/\text{g}$ 、純度92％の低純度粉末であった。

【0025】

【発明の効果】

本発明の酸化珪素粉末の製造方法及び製造装置によれば、高純度な非晶質酸化

珪素粉末を連続的かつ安定的に製造することができ、結果として安価な酸化珪素を市場に供給することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

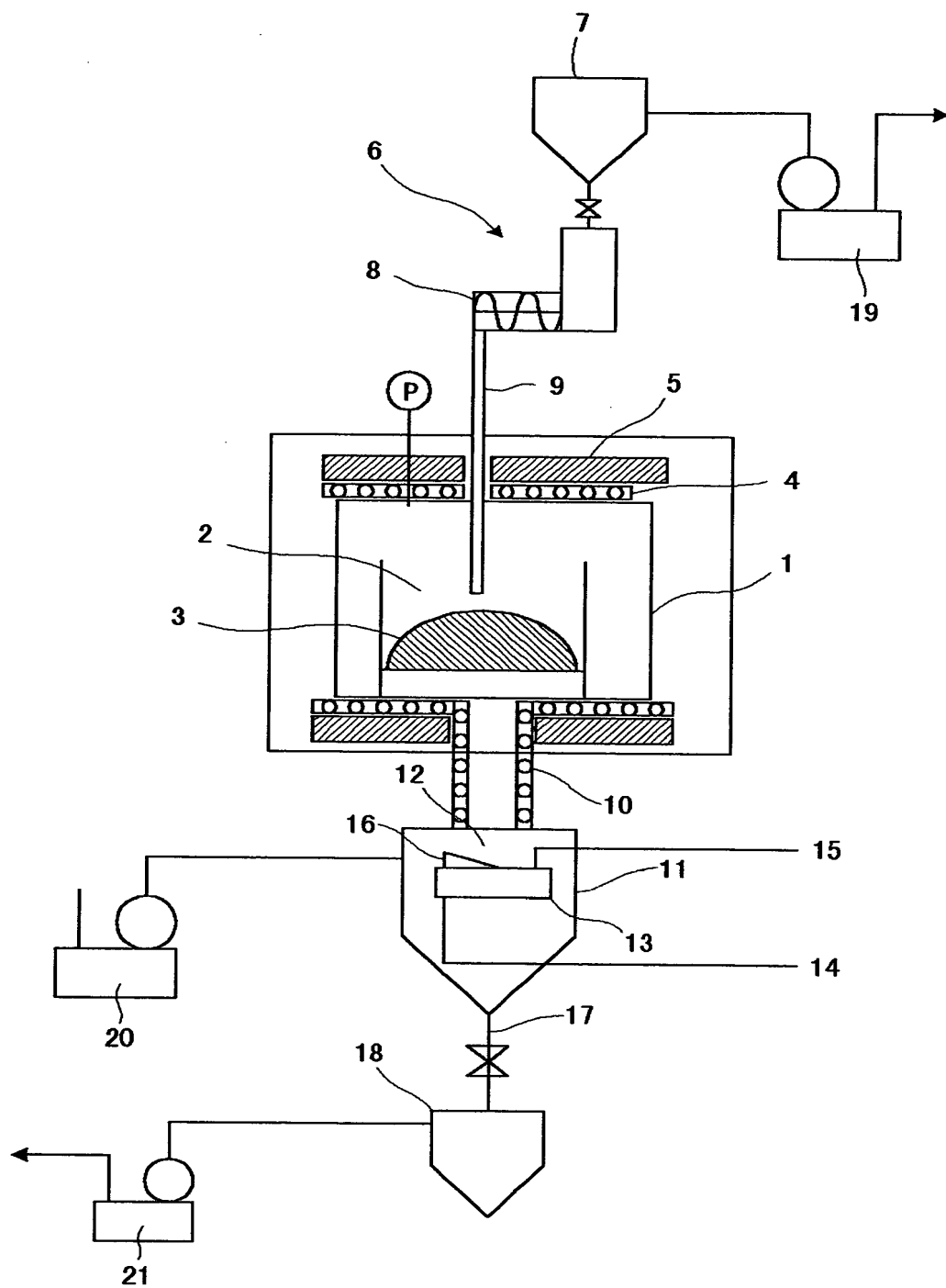
本発明の一実施例を示す概略断面図である。

【符号の説明】

- 1 反応炉
- 2 反応室
- 3 混合原料粉末
- 4 ヒーター
- 5 断熱材
- 6 原料供給機構
- 7 補給ホッパー
- 8 フィーダー
- 9 原料供給管
- 10 搬送管（搬送ライン）
- 11 析出槽
- 12 析出室
- 13 基体
- 14 冷媒導入管
- 15 冷媒排出管
- 16 掻き取り装置（回収機構）
- 17 回収管
- 18 回収槽
- 19 真空ポンプ
- 20 真空ポンプ
- 21 真空ポンプ

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【解決手段】 二酸化珪素粉末を含む混合原料粉末を反応炉内に供給し、この反応炉内で不活性ガスもしくは減圧下に1100～1600℃に加熱して酸化珪素ガスを発生させ、この酸化珪素ガスを1000℃を超え1300℃以下に保持された搬送管を通して冷却室内に導入し、冷却した基体表面に析出させ、次いでこの酸化珪素析出物を連続的に回収することを特徴とする酸化珪素粉末の連続製造方法。

【効果】 本発明の酸化珪素粉末の製造方法及び製造装置によれば、高純度な非晶質酸化珪素粉末を連続的かつ安定的に製造することができ、結果として安価な酸化珪素を市場に供給することができる。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002060]

1. 変更年月日	1990年 8月22日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区大手町二丁目6番1号
氏 名	信越化学工業株式会社